(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 20. Juni 2002 (20.06.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 02/048215 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: 4/06, 4/12, 4/16, 4/00

C08F 10/10,

RATH, Hans, Peter [DE/DE]; Friedhofstr. 7, 67269 Grünstadt (DE).

....,,,

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP01/14545

(74) Anwälte: KINZEBACH, Werner usw.; Ludwigsplatz 4, 67059 Ludwigshafen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:

11. Dezember 2001 (11.12.2001)

(81) Bestimmungsstaaten (national): JP, US.

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,

NL, PT, SE, TR).

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

DE

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht

(30) Angaben zur Priorität: 100 61 727.1 12. Dezen

100 61 727.1 12. Dezember 2000 (12.12.2000)

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 7. Nove

7. November 2002

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; 67056 Lugwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LANGE, Arno [DE/DE]; Oberes Gaistal 3b, 67098 Bad Dürkheim (DE). Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING POLYISOBUTENES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON POLYISOBUTENEN

(57) Abstract: The invention relates to a method for producing polyisobutenes, wherein at least 60 mol % of the polymer chains have at least one olefinically unsaturated terminal group, by cationically polymerizing isobutene or isobutene-containing monomer mixtures in a condensed phase. The inventive method is characterized in that the polymerization is carried out in the presence of an initiator system comprising: i) a Lewis acid selected among covalent metal chlorides and metalloid chlorides, and; ii) at least one organic compound (I) having at least one functional group FG that, together with the Lewis acid, forms a carbocation or a cationogenic complex under polymerization conditions, whereby FG is selected among acyloxy, alkoxy or halogen, which are bound to a secondary or tertiary C atom, to an allylic C atom or to a benzylic C atom. Said polymerization is carried out in a solvent that is inert to the Lewis acid, whereby the Lewis acid is used in molar deficiency with regard to the functional groups FG.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Polyisobutenen, worin wenigstens 60 mol-% der polymerketten wenigstens eine olefinisch ungesättigte Endgruppe aufweisen, durch kationische Polymerisation von Isobuten oder isobutenhaltigen Monomermischungen in kondensierter Phase, das dadurch gekennzeichnet ist, dass man die Polymerisation in Gegenwart eines Initiatorsystems, umfassend i) eine Lewis-Säure, ausgewählt unter kovalenten Metallchloriden und Halbmetall-chloriden, ii) wenigstens eine organische Verbindung I mit wenigstens einer funktionellen Gruppe FG, die unter Polymerisationsbedingungen mit der Lewis-Säure ein Carbokation oder einen kationogenen Komplex bildet, wobei FG ausgewählt ist unter Acyloxy-, Alkoxy- oder Halogen, die an ein sekundäres oder tertiäres, an ein allylisches oder ein benzylisches C-Atom gebunden sind, in einem gegenüber der Lewis-Säure inerten Lösungsmittel durchgeführt, wobei die Lewis-Säure in molarem Unterschuss, bezogen auf die funktionellen Gruppen FG, eingesetzt wird.

WO 02/048215 A3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

international Application No

PCT/EP 01/14545 A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 CO8F10/10 CO8F4/06 C08F4/12 C08F4/16 C08F4/00 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 **C08F** Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category * Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. EP 0 652 233 A (BP CHEM INT LTD) 10 May 1995 (1995-05-10) X 1,2,5,6, 9-13 comparaison example 1 Υ 3,7,8,14 claims; example 5 X EP 0 556 965 A (BP CHEM INT LTD) 1,2 25 August 1993 (1993-08-25) comparaison example claims; examples 1,4,6 US 5 286 823 A (RATH HANS P) γ 7 15 February 1994 (1994-02-15) Α 1.2.5 EP 0 713 883 A (KANEGAFUCHI CHEMICAL IND) 3,8,14 29 May 1996 (1996-05-29) page 11, line 49 - line 56; claims page 5, line 1,2 Further documents are listed in the continuation of box C. X Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: *T* later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but clied to understand the principle or theory underlying the invention "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "Y" document of particular relevance; the daimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 24 June 2002 02/07/2002 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 ' NL – 2280 HV Rijswijk Tet. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

Kaumann, E

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 01/14545

0./0	AL-A DOCUMENTO CONGREDE TO DE COMO	PCI/EP 01/14545
C.(Continua Category °	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with Indication, where appropriate, of the relevant passages	Indiana de state de
Category	Charlett of document, with indication, where appropriate, of the resevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 279 456 A (KANEGAFUCHI CHEMICAL IND) 24 August 1988 (1988-08-24) page 5, line 16 -page 8, line 36; claims	1-14
A	EP 0 558 187 A (BP CHEM INT LTD) 1 September 1993 (1993-09-01) page 3, line 12 - line 21; claims	1,8
A	US 4 568 732 A (KENNEDY JOSEPH P ET AL) 4 February 1986 (1986-02-04) claims; table II	1,5

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 01/14545

				_ PCT/EF	01/14545
Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 0652233	Α	10-05-1995	EP AU	0652233 A2 8802091 A	10-05-1995 04-06-1992
			BR	9105127 A	21-07-1992
			CA	2056287 A1	29-05-1992
			EP	0489508 A2	10-06-1992
			HU	62918 A2	28-06-1993
			JP	4268309 A	24-09-1992
			MX	9102249 A1	08-07-1992
			NO	914661 A	29-05-1992
			US	5254649 A	19-10-1993
			ZA 	9109124 A	18-05-1993
EP 0556965	Α	25-08-1993	EP	0556965 A1	25-08-1993
US 5286823	Α	15-02-1994	EP	0628575 A1	14-12-1994
			BE	1006694 A5	22-11-1994
			US	5408018 A	18-04-1995
			AT	142232 T	15-09-1996
	•		DE	59303667 D1	10-10-1996
			ES 	2093318 T3 	16-12-1996
EP 0713883	Α	29-05-1996	DE	69513623 D1	05-01-2000
			DE	69513623 T2	13-07-2000
			EP	0713883 A1	29-05-1996
			BE	1008739 A3	02-07-1996
			JP WO	8053514 A 9533774 A1	27-02-1996
			US	5527870 A	14-12-1995 18-06-1996
					10-00-1990
EP 0279456	Α	24-08-1988	JP	1924833 C	25-04-1995
			JP	6051752 B	06-07-1994
			JP	63205304 A	24-08-1988
			DE	3853691 D1	08-06-1995
			DE EP	3853691 T2 0279456 A2	07-09-1995
			US	0279456 AZ 4870144 A	24-08-1988 26-09-1989
				40/U144 A	20-09-1985
EP 0558187	Α	01-09-1993	DE	69302117 D1	15-05-1996
			DE	69302117 T2	29-08-1996
			EP	0558187 A1	01-09-1993
			JP	3281088 B2	13-05-2002
			JP US	5279422 A	26-10-1993
				5304615 A 	19-04-1994
US 4568732	Α	04-02-1986	NONE		

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In __ nales Aktenzeichen
PCT/EP 01/14545

A. KLASSII IPK 7	FIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C08F10/10 C08F4/06 C08F4/12	C08F4/16	C08F4/00
Nach der int	ternationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klas	ssifikation und der IPK	
B. RECHEI	RCHIERTE GEBIETE		
	rter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbo COSF	ole)	
Recherchie	rte aber nicht zum Mindestprüfsloff gehörende Veröffentlichungen, so	welt diese unter die recherchier	ten Geblete fallen
Während de	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (N	arne der Datenbank und evtl. v	erwendete Suchbegriffe)
EPO-In	ternal		
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabi	e der in Betracht kommenden T	eile Betr. Anspruch Nr.
x	EP 0 652 233 A (BP CHEM INT LTD) 10. Mai 1995 (1995-05-10)		1,2,5,6, 9-13
Υ	Vergleichsbeispiel 1 Ansprüche; Beispiel 5		3,7,8,14
Х	EP 0 556 965 A (BP CHEM INT LTD) 25. August 1993 (1993-08-25) Vergleichsbeispiel Ansprüche; Beispiele 1,4,6		1,2
Υ	US 5 286 823 A (RATH HANS P) 15. Februar 1994 (1994-02-15)		7
Α `	Anspruch		1,2,5
Y	EP 0 713 883 A (KANEGAFUCHI CHEMI 29. Mai 1996 (1996-05-29) Seite 11, Zeile 49 - Zeile 56; Ar	· ·	3,8,14
1	Seite 5, Zeile 1,2		
		-/	
χ Welt entn	toro Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu lehmen	X Siehe Anhang Patentf	amile
"A" Veröffe aber n "E" älteres	e Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : intlichung, die den aligemeinen Stand der Technik definiert, incht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem Internationalen kledatum veröffentlicht worden ist	oder dem Prioritätsdatum v Anmeldung nicht kollidiert, Erfindung zugrundellegend Theorie angegeben ist	ie nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist und mit der sondem nur zum Verständnis des der ien Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden
scheir anden soll oc	ntlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- en zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer en im Recherchenbericht genannten Veröftentlichung belegt werden der die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie	kann allein aufgrund diese erfinderischer Tätigkeit ber "V" Veräffentlichung von beson	dorar Badoutung, dia bassanyushta Erfinduad
eine E 'P' Veröffe	entlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht mitlichung, die vor dem internationalen. Anmeldedetum, aber ande	werden, wenn die Veröffer Veröffentlichungen dieser diese Verbindung für einer *&" Veröffentlichung, die Mitglie	scher Tätigkeit beruhend betrachtet ittlichung mit einer oder mehreren anderen kategorie in Verbindung gebracht wird und i Fachmann nahellegend ist ed derselben Patentfamilie ist
	Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des Interna	ationalen Recherchenberichts
2	4. Juni 2002	02/07/2002	
Name und I	Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Palentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bedlenst	eter
	Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Kaumann, E	

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

tr ingles Aktenzeichen
PCT/EP 01/14545

C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	101727 01714545
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	enden Teile Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 279 456 A (KANEGAFUCHI CHEMICAL IND) 24. August 1988 (1988-08-24) Seite 5, Zeile 16 -Seite 8, Zeile 36; Ansprüche	1-14
A	EP 0 558 187 A (BP CHEM INT LTD) 1. September 1993 (1993-09-01) Seite 3, Zeile 12 - Zeile 21; Ansprüche	1,8
A	US 4 568 732 A (KENNEDY JOSEPH P ET AL) 4. Februar 1986 (1986-02-04) Ansprüche; Tabelle II	1,5

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1982)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaden zu Veröttentlichungen, die zur seiben Patentfamilie gehören

Int les Aktenzeichen
PCT/EP 01/14545

	cherchenbericht es Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Aitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP C	0652233	A	10-05-1995	EP	0652233	A2	10-05-1995
				ĀÚ	8802091		04-06-1992
				BR	9105127		21-07-1992
				CA	2056287	A1	29-05-1992
				ĔΡ	0489508		10-06-1992
				Hับ -	62918		28-06-1993
				JP	4268309		24-09-1992
				MX	9102249		08-07-1992
				NO	914661		
				US			29-05-1992
					5254649	A	19-10-1993
				ZA 	9109124	A 	18-05-1993
EP C)556965 	A	25-08-1993	EP	0556965	A1	25-08-1993
US 5	5286823	Α	15-02-1994	EP	0628575	A1	14-12-1994
				BE	1006694	A5	22-11-1994
				US	5408018	Α	18-04-1995
				AT	142232		15-09-1996
				DE	59303667	D1	10-10-1996
				ES	2093318	T3	16-12-1996
EP (713883	Α	29-05-1996	 DE	69513623	D1	05-01-2000
				ĎĒ	69513623		13-07-2000
				ΕP	0713883		29-05-1996
				BE	1008739		02-07-1996
				JP	8053514		27-02-1996
				WO	9533774		14-12-1995
				US	5527870		18-06-1996
							10-00-1990
EP (279456	Α	24-08-1988	JP	1924833	_	25-04-1995
				JP	6051752	_	06-07-1994
				JP	63205304		24-08-1988
				ÐΕ	3853691		08-06-1995
				DE	3853691		07-09-1995
				EP	0279456		24-08-1988
				US	4870144	Α	26-09-1989
EP (0558187	Α	01-09-1993	DE	69302117		15-05-1996
				DE	69302117	T2	29-08-1996
				EP	0558187		01-09-1993
				JΡ	3281088	B2	13-05-2002
				JP	5279422		26-10-1993
				ÜS	5304615		19-04-1994
	4568732	Α	04-02-1986	KEINE			